

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局



(43) 国際公開日
2005 年 9 月 9 日 (09.09.2005)

PCT

(10) 国際公開番号
WO 2005/082818 A1

- (51) 国際特許分類: C07C 5/373, 11/02, C07B 61/00 (81) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能): AE, AG, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DK, DM, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, KE, KG, KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MA, MD, MG, MK, MN, MW, MX, MZ, NA, NI, NO, NZ, OM, PG, PH, PL, PT, RO, RU, SC, SD, SE, SG, SK, SL, SM, SY, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, YU, ZA, ZM, ZW.
- (21) 国際出願番号: PCT/JP2005/002719
- (22) 国際出願日: 2005 年 2 月 21 日 (21.02.2005)
- (25) 国際出願の言語: 日本語
- (26) 国際公開の言語: 日本語
- (30) 優先権データ:
特願2004-053153 2004 年 2 月 27 日 (27.02.2004) JP
- (71) 出願人 (米国を除く全ての指定国について): 出光興産株式会社 (IDEMITSU KOSAN CO., LTD.) [JP/JP]; 〒1008321 東京都千代田区丸の内三丁目 1 番 1 号 Tokyo (JP).
- (72) 発明者; および
- (75) 発明者/出願人 (米国についてのみ): 藤川 伸夫 (FUJIKAWA, Nobuo) [JP/JP]; 〒2990193 千葉県市原市姉崎海岸 1 番地 1 Chiba (JP).
- (74) 代理人: 大谷 保, 外(OHTANI, Tamotsu et al.); 〒1050001 東京都港区虎ノ門三丁目 2 5 番 2 号 ブリヂストン虎ノ門ビル 6 階 大谷特許事務所 Tokyo (JP).
- (84) 指定国 (表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LS, MW, MZ, NA, SD, SL, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, MD, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, MC, NL, PL, PT, RO, SE, SI, SK, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG).
- 添付公開書類:
— 国際調査報告書
- 2 文字コード及び他の略語については、定期発行される各 PCT ガゼットの巻頭に掲載されている「コードと略語のガイダンスノート」を参照。

(54) Title: PROCESS FOR PRODUCING INTERNAL OLEFIN

(54) 発明の名称: 内部オレフィンの製造方法

(57) Abstract: A process for producing an internal olefin, comprising bringing an α -olefin whose water content measured by the Karl Fischer's testing method is ≤ 50 ppm into contact with a zeolite and/or montmorillonite catalyst to thereby effect isomerization. Thus, there can be provided an industrially advantageous process capable of selective internal isomerization of a raw material α -olefin using an inexpensive catalyst while inhibiting any catalyst deterioration and side reactions, such as skeletal isomerization, oligomerization and cracking.

(57) 要約: 本発明は、ゼオライト及び／又はモンモリロナイト触媒に、カールフィッシャー試験法による水分含有量が 50 ppm 以下の α -オレフィンを接触させ、異性化する内部オレフィンの製造方法であり、安価な触媒を用いて原料の α -オレフィンを、触媒劣化及び骨格異性化、オリゴマー化、クラッキングなどの副反応を抑制して選択的に内部異性化する工業的に有利な方法を提供する。



WO 2005/082818 A1

明 細 書

内部オレフィンの製造方法

技術分野

- [0001] 本発明は、内部オレフィンの製造方法に関し、更に詳しくは、ゼオライト及び／又はモンモリロナイト触媒の存在下、水分含有量が50ppm以下の α -オレフィンを穏和な条件で接触させ、選択的に内部異性化することにより、触媒劣化及び骨格異性化、オリゴマー化、クラッキングなどの副反応が抑制された、内部オレフィンの効率的な製造方法に関するものである。

背景技術

- [0002] 従来、内部オレフィンとは、様々な用途、具体的には、石油掘削油基油、洗剤原料、紙サイズ剤原料、潤滑油の基油又は原料、化成品原料などに用いられている。

そして、これらの用途に内部オレフィンが用いられる場合、該内部オレフィンに対し、以下に示すことが要求される。

例えば、石油掘削油基油用途においては、一般に、炭素数16や18の内部オレフィンが使用されるが、流動点、動粘度などを調節し、かつ高い生分解性を有することが要求される。

洗剤原料用途においては、炭素数10〜19程度の幅広い炭素数の内部オレフィンが用いられるが、生分解性を向上させるために、特に高い直鎖率が要求されることが多い。

紙サイズ剤原料用途においては、炭素数10〜30程度の幅広い炭素数の内部オレフィンが用いられるが、この場合も高い直鎖率が要求されることが多い。

更に、潤滑油の基油又は原料用途においては、主に炭素数5〜30程度の幅広い炭素数の α -オレフィンが用いられるが、流動点、動粘度などの調節や高直鎖率が要求されることがある。

- [0003] Pt、Ru、Ni等をアルミナなどに担持した金属触媒、フェリエライト及びSAPO等のゼオライト又は粘土等の固体酸触媒、これらを複合した金属／固体酸触媒による α -オレフィンの内部異性化反応は公知であり、工業的に既に実施されている。

金属／固体酸触媒による α -オレフィンの内部異性化反応における主な副反応は、オリゴマー化反応、骨格異性化反応及びクラッキング反応である。

オレフィンの炭素数はオリゴマー化が起こると長くなり、クラッキングが起こると短くなる。

骨格異性化では、炭素数は変化しないが、直鎖状であったオレフィンが二重結合の位置により3置換又は4置換となった分岐オレフィンが生成する。

オリゴマー化とクラッキングにおいても分岐オレフィンも生成する。

内部オレフィンの製造法として、このような反応を利用する技術も散見されるが、近年では、製品が洗剤や掘削油等の原料に使われることから生分解性が特に重視され、生分解性に劣る分岐オレフィンを生ずる技術は好まれない。

[0004] ゼオライトなどの固体酸触媒、例えば、H-ZSM-5を用いるオレフィンの異性化反応において、骨格異性化及び内部異性化反応が起こることは公知である(例えば、非特許文献1)。

また、Cr／アルミノホスフェート(例えば、特許文献1)、フェリエライト(例えば、特許文献2)及びNiO／ZSM-5(例えば、特許文献3)等の触媒を用い、骨格異性化等の副反応を抑制しながら内部異性化のみを選択的に進める方法も公知である。

また、Pdなどの担持触媒又は外表面酸点をシラン処理した触媒等の技術も知られている。

しかしながら、これらの技術は、触媒の性能改良に主眼がおかれており、触媒劣化及び上記副反応を抑制する穏和な反応条件を実現するためのプロセス面での改良については殆どなされていない。

[0005] 特許文献1: 米国特許第4593146号明細書

特許文献2: 米国特許第4727203号明細書

特許文献3: 米国特許第6054629号明細書

非特許文献1: J. Catal. 92(1985)

発明の開示

[0006] 本発明は、このような状況下、安価なゼオライト及び／又はモンモリロナイト触媒の存在下、 α -オレフィンを穏和な条件で接触させ、選択的に内部異性化することによ

り、触媒劣化及び骨格異性化、オリゴマー化、クラッキングなどの副反応が抑制された、内部オレフィンの効率的な製造方法を提供することを目的とするものである。

[0007] 本発明者は、前記目的を達成するために鋭意研究を重ねた結果、触媒として安価なゼオライト及び／又はモンモリロナイト触媒を用い、特定の水分含有量の α -オレフィンを内部異性化することにより、その目的を達成し得ることを見出した。

本発明はかかる知見に基づいて完成したものである。

[0008] すなわち、本発明は、

(1)ゼオライト及び／又はモンモリロナイト触媒に、カールフィッシャー試験法による水分含有量が50ppm以下の α -オレフィンを接触させ、異性化することを特徴とする内部オレフィンの製造方法、

(2) α -オレフィンが、炭素数8〜24である上記(1)に記載の内部オレフィンの製造方法、

(3)反応温度が、70〜200℃である上記(1)又は(2)に記載の内部オレフィン

(4) α -オレフィンが、蒸留又は乾燥剤により脱水処理されたものである上記(1)〜(3)のいずれかに記載の内部オレフィンの製造方法

を提供するものである。

発明を実施するための最良の形態

[0009] 本発明の内部オレフィンの製造方法において、原料の α -オレフィンとしては、炭素数8〜24、好ましくは炭素数16〜20の α -オレフィンが用いられる。

この炭素数8〜24の α -オレフィンは、通常、炭素数2〜4の α -オレフィン、好ましくはエチレンを、チーグラ型触媒を用いて低重合させることにより得ることができる。

従って、反応生成物であるエチレンなどの α -オレフィンの低重合体は、1-ブテン、1-ヘキセン、1-オクテン、1-デセン、1-ドデセン、1-テトラデセン、1-ヘキサデセン、1-オクタデセン、1-イコセンなどの混合物となる。

本発明においては、得られる内部オレフィンの使用目的に応じて、前記 α -オレフィン低重合体の単一留分を用いてもよいし、又は炭素数がある範囲にある混合留分を用いてもよい。

更に、前記のチーグラ型触媒によるエチレンなどの α -オレフィンの低重合体で

はなく、接触分解装置などから得られる α -オレフィンを用いることもできる。

本発明においては、前記の炭素数8〜24の α -オレフィンの中から選ばれる少なくとも一種の α -オレフィンを、ゼオライト及び／又はモンモリロナイト触媒を用いて内部異性化することにより、内部オレフィンを製造する。

[0010] 本発明に用いられる原料の α -オレフィン中の水分含有量は、50ppm以下であり、好ましくは20ppm以下、更に好ましくは10ppm以下である。

α -オレフィン中の水分測定法としては、本発明ではカールフィッシャー試験法(JIS K-2275に準拠)が用いられる。

α -オレフィン中の水分の脱水方法としては、特に制限はないが、乾燥剤を充填した脱水塔に α -オレフィンを流通させたり、反応前に α -オレフィンを蒸留して水分を除去してもよい。

脱水塔の形式としては、通常の固定床形式を採用することができ、乾燥剤としては、モレキュラーシーブ3A、4A、5A、活性アルミナ、無水シリカゲル等を200〜500℃で乾燥したものを使用することができる。

脱水塔は、室温で運転することが可能であり、圧力及び流量等は異性化反応条件に準じて設定することもできる。

[0011] 本発明で用いられる触媒としては、ゼオライト及びモンモリロナイト触媒が挙げられる。

ゼオライト触媒としては、天然のゼオライト及び合成ゼオライトが挙げられる。

天然のゼオライトとしては、チャバサイト、モルデナイト、エリオナイト、ホージャサイト、クリノブチロナイト等を挙げることができる。

合成のゼオライトとしては、A型、B型、X型、Y型、L型、オメガ型、MFI型等が挙げられる。

中でも、MFI型が好ましく、MFI型としては、ZSM-5、シリカライト等が好適である。

本発明のゼオライト触媒は、前記のゼオライト類をそのまま用いたものであってもよいし、必要に応じて酸処理、アンモニウムイオン処理、イオン交換処理などを施し、酸性質を制御したものをを用いたものであってもよい。

特に、カチオンの一部又は全部を置換したプロトン型ゼオライトが好ましく、中でも、プロトンに置換されたH-ZSM-5が好ましい。

- [0012] 本発明のモンモリロナイト触媒としては、スメクタイト鉱物に分類されるモンモリロナイト、ノントロナイト、バイデライト、ヘクライト及びサポナイト等の鉱物が挙げられ、このうち、触媒活性等の面でモンモリロナイトを使用することが好ましい。

本発明のモンモリロナイト触媒は、前記のモンモリロナイトなどの粘土鉱物をそのまま用いたものであってもよいし、必要に応じて酸処理、ハロゲン化処理、カチオン交換処理などを施し、酸性質を制御したものであってもよい。

- [0013] ここで、酸処理としては、例えば、塩酸、硫酸、リン酸などの無機酸を含む水溶液又はアルコールなどの有機溶剤液中に、前記粘土鉱物を分散させ、必要に応じ加温処理したのち、ろ過、乾燥後、更に必要に応じ、焼成処理する方法などを用いることができる。

また、ハロゲン化処理としては、例えば、フッ化アンモニウム、フッ化アルミニウム、塩化アルミニウムなどのハロゲン化合物を含む水溶液中に、前記粘土鉱物を分散させ、必要に応じ加温処理したのち、ろ過、乾燥後、さらに必要に応じ焼成処理する方法、又は反応管に前記粘土鉱物を充填し、これにフルオロハイドロカーボンを500℃程度の温度で流通させる方法などを用いることができる。

一方、カチオン交換処理としては、例えば、各種金属塩を含む水溶液中に、前記粘土鉱物を分散させ、カチオン交換させたのち、ろ過、水洗する方法などを用いることができる。

- [0014] 本発明においては、このようにして調製されたゼオライト及び／又はモンモリロナイト触媒の存在下に、水分含有量が50ppm以下の炭素数8〜24の α -オレフィンを加熱処理し、内部異性化反応を起こさせて、内部オレフィンを製造する。

この内部異性化反応において、一般に低温では、 α -オレフィン転化率は低いが、骨格異性化やオリゴマー化は起こり難く、又生成物は、二重結合位置がベータ位又はガンマ位に移動したオレフィンが主体となる。

一方、高温では、一般に転化率の増加に伴い、骨格異性化やオリゴマー化などの副反応により、選択率が低下すると共に、二重結合がデルタ位又はそれより内部に

移動したオレフィンの生成が促進される。

従って、生産性、及び骨格異性化、オリゴマー化、クラッキングの抑制などを考慮すると、本発明においては、通常、反応温度は70〜200℃、好ましくは100〜180℃の範囲で選定される。

反応形式については特に制限はなく、固定床流通式及びバッチ式(連続式攪拌槽を含む)のいずれであってもよい。

反応は、分子量変化を伴わないため、通常、常圧〜5MPa、好ましくは常圧〜1MPaで実施することができる。

また、本発明で用いるゼオライト及び／又はモンモリロナイト触媒は、焼成による活性化処理を施さなくても、100〜500℃程度の温度で窒素又は空気等で前処理した後を使用することができる。

[0015] 反応形式が、固定床流通式の場合、 α -オレフィンの転化率及び生産性などを考慮すると、LHSV(液時空間速度)は、0.1〜10h⁻¹、好ましくは0.5〜4h⁻¹の範囲で選定される。

また、反応形式がバッチ式である場合、ゼオライト及び／又はモンモリロナイト触媒の使用量は、原料の α -オレフィン100質量部に対し、通常1〜60質量部、好ましくは10〜50質量部、より好ましくは20〜40質量部の範囲で選ばれる。

この場合、反応時間は、反応温度や所望の α -オレフィン転化率などにより左右され、一概に定めることはできないが、通常30分乃至20時間程度で十分であり、好ましくは1〜10時間程度である。

このように、ゼオライト及び／又はモンモリロナイト触媒を用い、 α -オレフィンの水分含有量を規定することにより、比較的穏和な条件で、 α -オレフィンを選択的に内部異性化することができる。

しかも、触媒の劣化及び骨格異性化、オリゴマー化、クラッキングなどの望ましくない副反応を抑制することができるので、所望の内部オレフィンが収率よく得られる。

また、反応生成液を蒸留精製することなしに製品とすることができるため、オリゴマー等の除去のための蒸留塔等が不要になるため経済性が高い。

また、使用後の触媒を再生する必要がある場合には、反応形式に応じ、例えば、洗

浄、乾燥、焼成などの操作が可能な触媒再生設備を設けることができるが、本発明で用いるゼオライト及び／又はモンモリロナイト触媒は、一般に安価であるので、触媒交換を前提としても、十分経済的なプロセスが設計可能である。

[0016] 次に、本発明の方法で得られた内部オレフィンの用途及び本発明の方法における利点を示す。

(1) 石油掘削油基油

このような用途には、炭素数16や18の内部オレフィンが使用される。

そして、一般に流動点、動粘度などを調節し、かつ高い生分解性を有することが要求されるが、本発明においては、原料の α -オレフィンとして直鎖率の高いものを用い、かつ二重結合分布を制御することで、その要求に応えることができる。

(2) 洗剤原料

この用途には、内部オレフィンとして、炭素数が10〜19程度のものが用いられるが、特に高い直鎖率のものを要求されることが多い。

本発明においては、骨格異性を効果的に抑制し得るので、原料の α -オレフィンとして、直鎖率の高いものを用いることで、その要求に応えることができる。

[0017] (3) 紙サイズ剤原料

この用途には、炭素数10〜30の幅広い内部オレフィンが用いられるが、高い直鎖率のものを要求される場合が多く、前記(2)と同様に、原料の α -オレフィンとして直鎖率の高いものを用いることで、その要求に応えることができる。

(4) 潤滑油基油又は原料

この用途には、主に炭素数6〜30の幅広い内部オレフィンが用いられる。

そして、流動点、動粘度、生分解性などを調節することが要求されることがあるが、本発明においては、原料の α -オレフィンとして直鎖率の高いものを用い、かつ二重結合分布を制御することで、その要求に応えることができる。

実施例

[0018] 次に、本発明を実施例及び比較例により、更に詳細に説明するが、本発明は、これらの例によってなんら限定されるものではない。

実施例1

直径1インチのステンレス鋼製管(長さ0.6m、内径25mm)に、モレキュラーシーブ3Aを200ml充填し、窒素ガスを100ml/分で流し、300℃で24時間乾燥し、脱水塔とした。

一方、直径12mmのステンレス鋼製反応塔(長さ1.1m、内径10mm)に、HMF1-90(ブードケミー社製、プロトン型MFIゼオライト触媒)50mlを充填し、窒素ガスを100ml/分で流し、300℃で4時間前処理した。

脱水塔の上部を反応塔下部につなぎ、脱水塔の下部から、温度20℃でカール・フイッシャー試験法で測定した水分含有量が60ppmの1-ヘキサデセン〔出光石油化学製リニアレン16(直鎖 α -オレフィン92質量%、分岐 α -オレフィン8質量%、直鎖率92%)〕を上向流で100ml/時間で供給した。

脱水塔出口(反応塔入口)における水分含有量は5ppmであった。

反応塔出口から1-ヘキサデセン液が流出してきた時点で、反応塔温度を140℃まで昇温して反応を開始した。

72時間で反応の初期活性が安定し、200時間後の反応液を分析したところ、1-ヘキサデセンの転化率は96.0%、オリゴマー生成量は1.0質量%であり、直鎖率は92.0%で変化がなかった。

その結果を表1に示す。

[0019] 比較例1

水分含有量が60ppmの1-ヘキサデセンを脱水塔を通さず、直接反応塔に供給した他は、実施例1と同じ条件で反応を行なった。

72時間で反応の初期活性が安定し、200時間後の反応液を分析したところ、1-ヘキサデセンの転化率は70.0%、オリゴマー生成量は0.4質量%であり、直鎖率は92.0%で変化がなかった。

その結果を表1に示す。

[0020] 比較例2

比較例1において、1-ヘキサデセンの転化率を上げるために、反応温度を145℃から180℃に昇温して反応を行なった。

180℃に昇温してから200時間後の反応液を分析したところ、1-ヘキサデセンの

転化率は96.0%、オリゴマー生成量は3.2質量%であり、直鎖率は86.0%に低下した。

その結果を表1に示す。

[0021] [表1]

表 1

	実施例1	比較例1	比較例2
転化率(%)	96.0	70.0	96.0
直鎖率(%)	92.0	92.0	86.0
直鎖 α -オレフィン(質量%)	3.7	27.6	3.4
分岐 α -オレフィン(質量%)	0.3	2.4	0.6
直鎖内部オレフィン(質量%)	87.4	64.0	79.8
分岐内部オレフィン(質量%)	7.6	5.6	13.0
オリゴマー(質量%)	1.0	0.4	3.2
直鎖内部オレフィン収率(%)	87.4	64.0	79.8

産業上の利用可能性

[0022] 本発明の方法によれば、安価なゼオライト及び／又はモンモリロナイト触媒の存在下、水分含有量が50ppm以下の α -オレフィンを穏和な条件で、選択的に内部異性化させることにより、触媒劣化及び骨格異性化、オリゴマー化、クラッキングなどの副反応を抑制でき、内部オレフィンを効率よくかつ工業的に有利に製造することができる。

請求の範囲

- [1] ゼオライト及び／又はモンモリロナイト触媒に、カールフィッシャー試験法による水分含有量が50ppm以下の α -オレフィンと接触させ、異性化することを特徴とする内部オレフィンの製造方法。
- [2] α -オレフィンが、炭素数8〜24である請求項1に記載の内部オレフィンの製造方法。
- [3] 反応温度が、70〜200℃である請求項1又は2に記載の内部オレフィンの製造方法。
- [4] α -オレフィンが、蒸留又は乾燥剤により脱水処理されたものである請求項1〜3のいずれかに記載の内部オレフィンの製造方法。

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP2005/002719

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl.⁷ C07C5/373, 11/02, C07B61/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl.⁷ C07C5/373, 11/02, C07B61/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Jitsuyo Shinan Koho	1922-1996	Jitsuyo Shinan Toroku Koho	1996-2005
Kokai Jitsuyo Shinan Koho	1971-2005	Toroku Jitsuyo Shinan Koho	1994-2005

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP 2002-520378 A (Chevron Phillips Chemical Company LLC), 09 July, 2002 (09.07.02), Claims; Par. Nos. [0023] to [0032] & WO 00-003961 A1 & US 6054629 A & AU 3879999 A & EP 1097119 A1 & CN 1307552 A & KR 1071459 A & NO 20010204 A	1-4
X	WO 90-03354 A1 (Mitsubishi Monsanto Chemical Co.), 05 April, 1990 (05.04.90), Claims & US 5087793 A & EP 396763 A1 & JP 2-510024 A	1-4



Further documents are listed in the continuation of Box C.



See patent family annex.

* Special categories of cited documents:

"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance

"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date

"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)

"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means

"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention

"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone

"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art

"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search
27 April, 2005 (27.04.05)

Date of mailing of the international search report
17 May, 2005 (17.05.05)

Name and mailing address of the ISA/
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2005/002719

C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
A	JP 8-268924 A (Kuraray Co., Ltd.), 15 October, 1996 (15.10.96), Claims; Par. Nos. [0009] to [0014] (Family: none)	1-4
A	JP 2003-154276 A (Institut Français du Pétrole), 27 May, 2003 (27.05.03), Claims; Par. Nos. [0065] to [0068], [0104] to [0106] & US 2003-0060359 A1 & FR 2829039 A1 & GB 2383962 A	1-4

A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.⁷

C07C 5/373, 11/02 C07B 61/00

B. 調査を行った分野

調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int.Cl.⁷

C07C 5/373, 11/02 C07B 61/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	1922-1996年
日本国公開実用新案公報	1971-2005年
日本国実用新案登録公報	1996-2005年
日本国登録実用新案公報	1994-2005年

国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP 2002-520378 A (シェブロン フィリップス ケミカル カンパニー・エル・ピー) 2002.07.09 特許請求の範囲 【0023】 - 【0032】 & WO 00-003961 A1 & US 6054629 A & AU 3879999 A & EP 1097119 A1 & CN 1307552 A & KR 1071459 A & NO 20010204 A	1-4
X	WO 90-03354 A1 (三菱モンサント化成株式会社) 1990.04.05 特許請求の範囲 & US 5087793 A & EP 396763 A1 & JP 2-510024 A	1-4

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

27.04.2005

国際調査報告の発送日

17.5.2005

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

山田 泰之

電話番号 03-3581-1101 内線 3443

4H

8720

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
A	JP 8-268924 A (株式会社クラレ) 1996.10.15 特許請求の範囲 【0009】 - 【0014】 (ファミリーなし)	1 - 4
A	JP 2003-154276 A (アンステイチュ フランセ デュ ペトロール) 2003.05.27 特許請求の範囲 【0065】 - 【0068】 【0104】 - 【0106】 & US 2003-0060359 A1 & FR 2829039 A1 & GB 2383962 A	1 - 4